

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problems Mailbox.**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

**No English title available.**

Patent Number: ☐ DE19544709

Publication  
date: 1997-06-05

Inventor(s): JONES PETER JOHN VAUGHAN (GB); HINGMANN ROLAND DR (DE); LANGHAUSER  
FRANZ DR (DE); MARCZINKE BERND LOTHAR DR (DE); HORTON MURRAY (GB);  
FISCHER DAVID DR (DE); SCHWEIER GUENTHER DR (DE)

Applicant(s): BASF AG (DE)

Requested  
Patent: ☐ EP0876420 (WO9719980)

Application  
Number: DE19951044709 19951130

Priority Number  
(s): DE19951044709 19951130

IPC  
Classification: C08J5/18; C08F4/64; C08F4/68; C08F10/06; C08L23/10; B32B27/32

EC  
Classification: C08F10/00, B32B27/32, C08J5/18

Equivalents: AU1032497, ☐ WO9719980

---

**Abstract**

---

The disclosure relates to the use of homopolymers of propylene or copolymers of propylene with C2-C10-alk-1-enes obtainable by polymerisation of appropriate monomers with metallocene catalysts to produce a biaxially aligned single- or multi-layered polypropylene film.

---

Data supplied from the esp@cenet database - I2

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



①⑨ BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENTAMT

①⑫ **Offenlegungsschrift**  
①⑩ **DE 195 44 709 A 1**

⑤① Int. Cl.<sup>8</sup>:  
**C 08 J 5/18**  
C 08 F 4/64  
C 08 F 4/68  
C 08 F 10/06  
C 08 L 23/10  
B 32 B 27/32

②① Aktenzeichen: 195 44 709.3  
②② Anmeldetag: 30. 11. 95  
②③ Offenlegungstag: 5. 6. 97

DE 195 44 709 A 1

⑦① Anmelder:  
BASF AG, 67063 Ludwigshafen, DE

⑦② Erfinder:  
Jones, Peter John Vaughan, Wolviston, GB;  
Hingmann, Roland, Dr., 68526 Ladenburg, DE;  
Langhauser, Franz, Dr., 67098 Bad Dürkheim, DE;  
Marczinke, Bernd Lothar, Dr., 67346 Speyer, DE;  
Horton, Murray, Saltburn, GB; Fischer, David, Dr.,  
67161 Gönheim, DE; Schweier, Günther, Dr., 67159  
Friedelsheim, DE

⑤⑤ Entgegenhaltungen:  
EP 05 45 303 A1

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

⑤④ Biaxial orientierte Polypropylenfolie aus Metallocen-Polypropylen

⑤⑦ Verwendung von Homopolymerisaten des Propylens oder Copolymerisaten des Propylens mit C<sub>2</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alk-1-enen, die durch die Polymerisation der entsprechenden Monomeren mit Metallocenkatalysatoren erhältlich sind, zur Herstellung einer biaxial orientierten ein- oder mehrschichtigen Polypropylenfolie.

DE 195 44 709 A 1

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

## Beschreibung

Die vorliegende Erfindung betrifft die Verwendung von Homopolymerisaten des Propylens oder Copolymerisaten des Propylens mit C<sub>2</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alk-1-enen, die durch die Polymerisation der entsprechenden Monomeren mit Metallocenkatalysatoren erhältlich sind zur Herstellung einer biaxial orientierten ein- oder mehrschichtigen Polypropylenfolie.

Kunststoffe, insbesondere Olefinpolymerisate oder Polyvinylchlorid (PVC), werden weitverbreitet zu Folien mit einer Dicke von 0,1 bis 200 µm verarbeitet. Diese Folien können aus einer einzigen Schicht bestehen oder aber aus mehreren Schichten, die üblicherweise aus unterschiedlichen Polymerisaten gebildet werden, aufgebaut sein (Laminatfolie, Coextrusionsfolie).

Das Haupteinsatzgebiet der Kunststoffolien ist zur Zeit die Verpackungsindustrie und hier hauptsächlich die Verpackung von Lebensmitteln und Genußmitteln. Weiterhin werden Folien zur Herstellung von Klebebändern, Etiketten und Elektroisulationsfolien verwendet.

An die Folien werden bezüglich optischer Eigenschaften wie Glanz, Transparenz, bezüglich ihrer mechanischen Eigenschaften wie Steifigkeit, Reißfestigkeit und Dehnbarkeit und bezüglich ihrer Barriereigenschaften große Anforderungen gestellt.

Die günstigen Eigenschaften soll, nicht zuletzt aus ökologischen Gründen, eine Folie mit einer möglichst geringen, und konstanten Foliendicke und einer guten Maschinengängigkeit (leicht verarbeitbar bei hohen Streckgeschwindigkeiten) in sich vereinigen.

Um derartige qualitativ hochwertige Folien herzustellen, hat man bisher auf die Orientierung (Streckung) der Folien in Längs- und in Querrichtung, bezogen auf die Extrusionsrichtung, nach der Extrusion des Polymerisats zurückgegriffen (biaxial orientierte Folien, bo-Verfahren).

Die bisher hierzu verwendeten Polymerisate weisen jedoch Nachteile auf; sei es daß sie, um für das bo-Verfahren geeignet zu sein, mit Fremdpolymeren als Additiven gemischt werden müssen (DE-A 43 37 251) oder daß sie nur einen sehr geringen Schmelzflußindex (MFI) haben dürfen, beispielsweise weniger als 1 g/10 min (EP-A 333 824). Herkömmlich verwendete Polymerisate mit einem Schmelzflußindex (MFR) von mehr als 1 g/10 min, gemessen bei 230°C und 2,16 kg Auflagegewicht, reißen häufig bei der Streckung der Folien während des bo-Prozesses.

Nachteilig bei der genannten Additivbeimischung ist, daß sich die Additive an wichtigen Teilen der Verarbeitungsmaschinen, wie Walzen und Schnecken absetzen können, wodurch Betriebsstörungen der Verarbeitungsmaschinen auftreten können.

Polymerisate, die einen niedrigen Schmelzflußindex, beispielsweise weniger als 1 g/10 min haben, bergen den Nachteil der schlechten Fließfähigkeit der Polymerschmelze und somit deren schlechte Verarbeitbarkeit zu Folien etc., welches eine Einschränkung für den Verarbeiter und den Kunden bedeutet.

Auch die Eigenschaften der nach dem Stand der Technik erhaltenen Folien lassen zu wünschen übrig; hier wären insbesondere der Glanz und die Welligkeit (ungleichmäßige Verteilung der Foliendicke über deren Fläche) der Folien zu nennen.

Der vorliegenden Erfindung lag daher die Aufgabe zugrunde, den geschilderten Nachteilen abzuweichen und insbesondere eine dünne Folie bereitzustellen, die wenig oder keine Fremdpolymere als Verarbeitungsadditive enthält, sich auch aus Polymeren mit einem höheren Schmelzflußindex als beispielsweise 1 g/10 min herstellen läßt, insbesondere mit den bo-Verfahren, und gute mechanische und optische Eigenschaften, beispielsweise Glanz, besitzt.

Demgemäß wurde die Verwendung von Homopolymerisaten des Propylens oder Copolymerisate des Propylens mit C<sub>2</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alk-1-enen, die durch die Polymerisation der entsprechenden Monomeren mit Metallocenkatalysatoren erhältlich sind zur Herstellung einer biaxial orientierten ein- oder mehrschichtigen Polypropylenfolie gefunden.

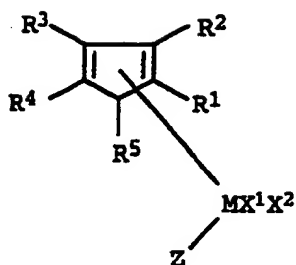
Die Folie kann einschichtig sein, oder aus mehreren Schichten aufgebaut sein.

Sie enthält im allgemeinen als wesentlichen Bestandteil ein Propylenhomopolymer oder ein Copolymer aus Propylen und einem Alk-1-en oder mehreren Alk-1-enen, ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Ethylen, 1-Buten, 1-Penten, 1-Hexen, 1-Hepten, 1-Octen, 1-Nonen, 1-Decen oder 4-Methyl-1-penten, oder sie enthält Mischungen dieser Polymeren, wobei die Mischungsverhältnisse nicht kritisch sind. Als Copolymere werden im allgemeinen statistische Copolymere verwendet.

Die Homopolymerisate des Propylens oder die Copolymerisate des Propylens mit C<sub>2</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alk-1-enen können durch die Polymerisation der entsprechenden Monomeren mit Metallocenkatalysatoren erhalten werden.

Unter Metallocenkatalysatoren sind hierin Stoffe zu verstehen, die im allgemeinen durch die Kombination einer Übergangsmetallverbindung oder mehrerer Übergangsmetallverbindungen, vorzugsweise des Titans, Zirkoniums oder Hafniums, die mindestens einen Liganden enthält, der im weitesten Sinne ein Derivat des Cyclopentadienylliganden ist, mit einem Aktivator, auch Cokatalysator oder metalloceniumionenbildende Verbindung genannt, entsteht und im allgemeinen gegenüber den beschriebenen Monomeren polymerisationsaktiv sind. Derartige Katalysatoren sind beispielsweise in EP-A 0 545 303, EP-A 0 576 970 und EP-A 0 582 194 beschrieben. Die erfindungsgemäßen Metallocenkatalysatoren enthalten als aktive Bestandteile im allgemeinen

A) einen Metallocenkomplex oder mehrere Metallocenkomplexe der allgemeinen Formel (I)



(I)

in der die Substituenten und Indizes folgende Bedeutung haben:

M Titan, Zirkonium, Hafnium, Vanadium, Niob oder Tantal,

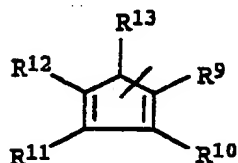
X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup> Fluor, Chlor, Brom, Iod, Wasserstoff, C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkyl, C<sub>6</sub>- bis C<sub>15</sub>-Aryl, —OR<sup>6</sup> oder —NR<sup>6</sup>R<sup>7</sup>

wobei R<sup>6</sup>, R<sup>7</sup> C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkyl, C<sub>6</sub>- bis C<sub>15</sub>-Aryl, Alkylaryl, Arylalkyl, Fluoralkyl oder Fluoraryl mit jeweils 1 bis 10 C-Atomen im Alkylrest und 6 bis 20 C-Atomen im Arylrest bedeutet,

R<sup>1</sup> bis R<sup>5</sup> Wasserstoff, C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkyl, 5- bis 7-gliedriges Cycloalkyl, das seinerseits ein C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkyl als Substituent tragen kann, C<sub>6</sub>- bis C<sub>15</sub>-Aryl oder Arylalkyl, wobei gegebenenfalls auch zwei benachbarte Reste gemeinsam für 4 bis 15 C-Atome aufweisende cyclische Gruppen stehen können, oder Si(R<sup>8</sup>)<sub>3</sub> mit

R<sup>8</sup> C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkyl, C<sub>6</sub>- bis C<sub>15</sub>-Aryl oder C<sub>3</sub>- bis C<sub>10</sub>-Cycloalkyl,

Z für X oder



steht,

wobei die Reste

R<sup>9</sup> bis R<sup>13</sup> Wasserstoff, C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkyl, 5- bis 7-gliedriges Cycloalkyl, das seinerseits ein C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkyl als Substituent tragen kann, C<sub>6</sub>- bis C<sub>15</sub>-Aryl oder Arylalkyl bedeuten und wobei gegebenenfalls auch zwei benachbarte Reste gemeinsam für 4 bis 15 C-Atome aufweisende cyclische Gruppen stehen können, oder Si(R<sup>14</sup>)<sub>3</sub> mit

R<sup>14</sup> C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkyl, C<sub>6</sub>- bis C<sub>15</sub>-Aryl oder C<sub>3</sub>- bis C<sub>10</sub>-Cycloalkyl,

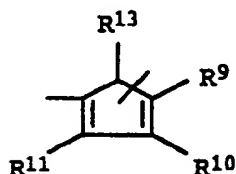
oder wobei die Reste

R<sup>4</sup> und Z gemeinsam eine Gruppierung —[Y(R<sup>15</sup>)(R<sup>16</sup>)]<sub>n</sub>—E— bilden, in der Y gleich oder verschieden sein kann und für Silicium, Germanium, Zinn oder Kohlenstoff steht,

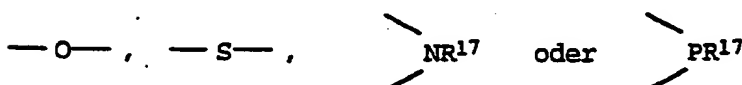
R<sup>15</sup>, R<sup>16</sup> für Wasserstoff, C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkyl, C<sub>3</sub>- bis C<sub>10</sub>-Cycloalkyl oder C<sub>6</sub>- bis C<sub>15</sub>-Aryl

n für die Zahlen 1, 2, 3 oder 4

E für



oder A steht, wobei A



bedeutet,

mit R<sup>17</sup> C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkyl, C<sub>6</sub>- bis C<sub>15</sub>-Aryl, C<sub>3</sub>- bis C<sub>10</sub>-Cycloalkyl, Alkylaryl oder Si(R<sup>18</sup>)<sub>3</sub>

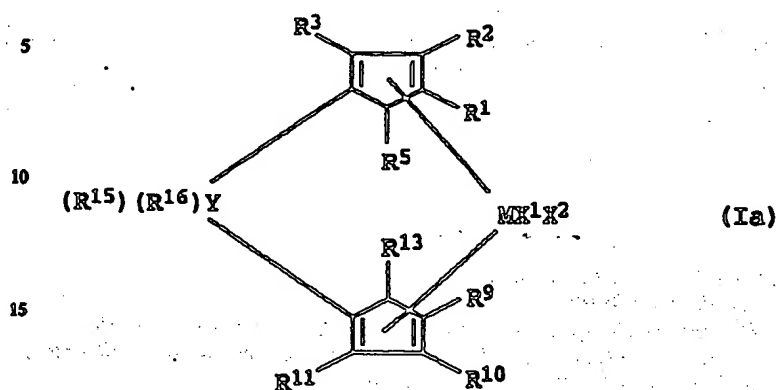
mit R<sup>18</sup> C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkyl, C<sub>6</sub>- bis C<sub>15</sub>-Aryl, C<sub>3</sub>- bis C<sub>10</sub>-Cycloalkyl oder Alkylaryl

und

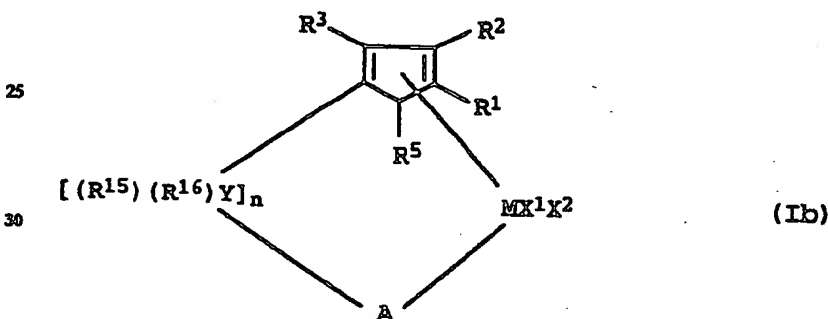
B) eine metalloceniumionenbildende Verbindung.

Generell sind im Sinne der Erfindung alle Metallocenkatalysatoren geeignet, mit welchen sich Propylenpolymere mit einem Schmelzflußindex (Melt Flow Rate, MFR) gemessen nach DIN 53735 bei 230°C und 2,16 kg

Auflagegewicht im Bereich von 0,001 bis 10 000 g/10 min erhalten lassen.  
Gut geeignete Übergangsmetallverbindungen (I) sind



20 und



35 Unter der Bezeichnung Metallocene werden also nicht nur die Bis (η-cyclopentadienyl)-Metall-Komplexe verstanden.

Die Reste X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup> können gleich oder verschieden sein, bevorzugt sind sie gleich.

Von den Verbindungen der Formel (Ia) sind diejenigen besonders geeignet, in denen

40 R<sup>1</sup> und R<sup>9</sup> gleich sind und für Wasserstoff oder C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkylgruppen stehen,

R<sup>9</sup> und R<sup>13</sup> gleich sind und für Wasserstoff, eine Methyl-, Ethyl-, iso-Propyl- oder tert.-Butylgruppe stehen

R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>10</sup> und R<sup>11</sup> die Bedeutung R<sup>3</sup> und R<sup>11</sup> C<sub>1</sub>- bis C<sub>4</sub>-Alkyl R<sup>2</sup> und R<sup>10</sup> Wasserstoff haben oder zwei benachbarte Reste R<sup>2</sup> und R<sup>3</sup> sowie R<sup>10</sup> und R<sup>11</sup> gemeinsam für 4 bis 12 C-Atome aufweisende cyclische Gruppen stehen,

45 R<sup>15</sup>, R<sup>16</sup> für C<sub>1</sub>- bis C<sub>6</sub>-Alkyl,

M für Titan, Zirkonium oder Hafnium,

Y für Silicium, Germanium, Zinn oder Kohlenstoff und

X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup> für Chlor oder C<sub>1</sub>- bis C<sub>6</sub>-Alkyl stehen.

Beispiele für besonders geeignete Komplexverbindungen sind u. a.

50 Dimethylsilyldiylbis(cyclopentadienyl)-zirkoniumdichlorid,

Dimethylsilyldiylbis(indenyl)-zirkoniumdichlorid,

Dimethylsilyldiylbis(tetrahydroindenyl)-zirkoniumdichlorid,

Ethylenbis(cyclopentadienyl)-zirkoniumdichlorid,

Ethylenbis(indenyl)-zirkoniumdichlorid,

55 Ethylenbis(tetrahydroindenyl)-zirkoniumdichlorid,

Tetramethylethylen-9-fluorenylcyclopentadienylzirkoniumdichlorid,

Dimethylsilyldiylbis(-3-tert.butyl-5-methylcyclopentadienyl)zirkoniumdichlorid,

Dimethylsilyldiylbis(-3-tert.butyl-5-ethylcyclopentadienyl)zirkoniumdichlorid,

Dimethylsilyldiylbis(-3-tert.butyl-5-methylcyclopentadienyl)dimethylzirkonium,

60 Dimethylsilyldiylbis(-2-methylindenyl)-zirkoniumdichlorid,

Dimethylsilyldiylbis(-2-isopropylindenyl)-zirkoniumdichlorid,

Dimethylsilyldiylbis(-2-tert.butylindenyl)-zirkoniumdichlorid,

Diethylsilyldiylbis(-2-methylindenyl)-zirkoniumdibromid,

Dimethylsilyldiylbis(-3-methyl-5-methylcyclopentadienyl)zirkoniumdichlorid,

65 Dimethylsilyldiylbis(-3-ethyl-5-isopropylcyclopentadienyl)zirkoniumdichlorid,

Dimethylsilyldiylbis(-2-methylindenyl)-zirkoniumdimethyl,

Dimethylsilyldiylbis[3,3'-(2-methylbenzindenyl)]-zirkoniumdichlorid,

Dimethylsilyldiylbis(-2-methylindenyl)-hafniumdichlorid,



Dimethylsilandiylbis[3,3'-(2-methylbenzindenyl)]hafniumdichlorid,  
Dimethylsilandiylbis[3,3'-(2-methylbenzindenyl)]zirkoniumdimethyl.

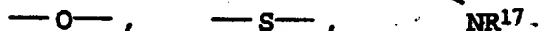
Bei den Verbindungen der allgemeinen Formel (Ib) sind als besonders geeignet diejenigen zu nennen, in denen M für Titan oder Zirkonium,

X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup> für Chlor oder C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkyl stehen,

Y für Silicium oder Kohlenstoff steht, wenn n = 1 ist oder für Kohlenstoff, wenn n = 2 ist

R<sup>15</sup>, R<sup>16</sup> für C<sub>1</sub>- bis C<sub>8</sub>-Alkyl, C<sub>3</sub>- und C<sub>6</sub>-Cycloalkyl oder C<sub>6</sub>- bis C<sub>10</sub>-Aryl,

A für



und

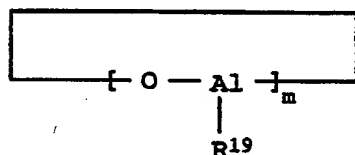
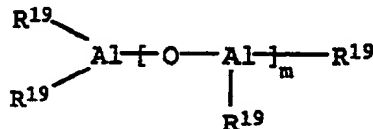
R<sup>1</sup> bis R<sup>3</sup> und R<sup>5</sup> für Wasserstoff, C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkyl, C<sub>3</sub>- bis C<sub>10</sub>-Cycloalkyl, C<sub>6</sub>- bis C<sub>15</sub>-Aryl oder Si(R<sup>8</sup>)<sub>3</sub> stehen, oder wobei zwei benachbarte Reste für 4 bis 12 C-Atome aufweisende cyclische Gruppen stehen.

Besonders bevorzugt sind Metallocenkomplexe der allgemeinen Formel (I), bei denen mindestens einer der Reste R<sup>1</sup> bis R<sup>5</sup> von Wasserstoff verschieden ist. Vorzugsweise werden Verbindungen der Formel (Ia) eingesetzt, wie Dimethylsilandiylbis(2-methylindenyl)zirkoniumdichlorid und Dimethylsilandiylbis(indenyl)zirkoniumdichlorid, ganz besonders bevorzugt ist das Dimethylsilandiyl-bis-[3,3'-(2-methylbenzindenyl)]zirkoniumdichlorid als Übergangsmetallverbindung (I).

Die Synthese derartiger Übergangsmetallverbindungen (I) kann nach an sich bekannten Methoden erfolgen, wobei die Umsetzung der entsprechend substituierten Cycloalkenylanionen mit Halogeniden der Übergangsmetalle, beispielsweise Titan, Zirkonium, Hafnium, Vanadium, Niob oder Tantal bevorzugt ist. Beispiele für entsprechende Herstellungsverfahren sind unter anderem in Journal of Organometallic Chemistry, Bd. 369 (1989), Seiten 359 bis 370 beschrieben.

Metalloceniumionenbildende Verbindungen B) sind dem Fachmann bekannt und beispielsweise in WO 95/14044 beschrieben.

Gut geeignet sind beispielsweise offenkettige oder cyclische Alumoxanverbindungen der allgemeinen Formel (II) oder (III)



wobei R<sup>19</sup> eine C<sub>1</sub>- bis C<sub>4</sub>-Alkylgruppe bedeutet, bevorzugt Methyl- oder Ethylgruppe und m für eine ganze Zahl von 5 bis 30, bevorzugt 10 bis 25 steht.

Die Herstellung dieser oligomeren Alumoxanverbindungen erfolgt üblicherweise durch Umsetzung einer Lösung von Trialkylaluminium mit Wasser und ist u. a. in der EP-A 284 708 und der USA 4,794,096 beschrieben.

In der Regel liegen die dabei erhaltenen oligomeren Alumoxanverbindungen als Gemische unterschiedlich langer, sowohl linearer als auch cyclischer Kettenmoleküle vor, so daß m als Mittelwert anzusehen ist. Die Alumoxanverbindungen können auch im Gemisch mit anderen Metallalkylen, bevorzugt mit Aluminiumalkylen vorliegen.

Es hat sich als vorteilhaft erwiesen, die Metallocenkomplexe und die oligomere Alumoxanverbindung in solchen Mengen zu verwenden, daß das atomare Verhältnis zwischen Aluminium aus der oligomeren Alumoxanverbindung und dem Übergangsmetall aus den Metallocenkomplexen im Bereich von 10 : 1 bis 106 : 1, insbesondere im Bereich von 10 : 1 bis 10<sup>4</sup> : 1, liegt.

Als metalloceniumionenbildende Verbindung B) können auch Koordinationskomplexverbindungen, ausgewählt aus der Gruppe der starken, neutralen Lewisäuren, der ionischen Verbindungen mit lewis sauren Kationen und der ionischen Verbindungen mit Brönstedtsäuren als Kationen eingesetzt werden.

Als starke neutrale Lewisäuren sind Verbindungen der allgemeinen Formel IV



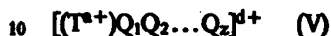
bevorzugt, in der

M<sup>2</sup> ein Element der III. Hauptgruppe des Periodensystems bedeutet, insbesondere B, Al oder Ga, vorzugsweise

B,  $X^3$ ,  $X^4$  und  $X^5$  für Wasserstoff,  $C_1$ - bis  $C_{10}$ -Alkyl,  $C_6$ - bis  $C_{15}$ -Aryl, Alkylaryl, Arylalkyl, Halogenalkyl oder Halogenaryl mit jeweils 1 bis 10 C-Atomen im Alkylrest und 6 bis 20 C-Atome im Arylrest oder Fluor, Chlor, Brom oder Jod stehen, insbesondere für Halogenaryle, wie Fluoraryle, vorzugsweise für Pentafluorphenyl.

Besonders bevorzugt sind Verbindungen der allgemeinen Formel (IV), in der  $X^3$ ,  $X^4$  und  $X^5$  gleich sind, vorzugsweise Tris(pentafluorphenyl)boran. Diese Verbindungen sowie Verfahren zu ihrer Herstellung sind an sich bekannt und beispielsweise in der WO 93/3067 beschrieben.

Als ionische Verbindungen mit lewissauren Kationen sind Verbindungen der allgemeinen Formel (V)



geeignet, in denen

T ein Element der I. bis VI. Hauptgruppe oder der I. bis VIII. Nebengruppe des Periodensystems bedeutet,

$Q_1$  bis  $Q_z$  für einfach negativ geladene Reste wie  $C_1$ - bis  $C_{28}$ -Alkyl,  $C_6$ - bis  $C_{15}$ -Aryl, Alkylaryl, Arylalkyl, Halogenalkyl, Halogenaryl mit jeweils 6 bis 20 C-Atomen im Aryl- und 1 bis 28 C-Atome im Alkylrest,  $C_1$ - bis  $C_{10}$ -Cycloalkyl, welches gegebenenfalls mit  $C_1$ - bis  $C_{10}$ -Alkylgruppen substituiert sein kann, Halogen,  $C_1$ - bis  $C_{28}$ -Alkoxy,  $C_6$ - bis  $C_{15}$ -Aryloxy, Silyl- oder Mercaptylgruppen

a für ganze Zahlen von 1 bis 6 steht,

z für ganze Zahlen von 0 bis 5

d der Differenz  $a - z$  entspricht, wobei d jedoch größer oder gleich 1 ist.

Besonders geeignet sind Carboniumkationen, Oxoniumkationen und Sulfoniumkationen sowie kationische Übergangsmetallkomplexe. Insbesondere sind das Triphenylmethylkation, das Silberkation und das 1,1'-Dimethylferrocenylkation zu nennen.

Bevorzugt besitzen sie nicht koordinierende Gegenionen, insbesondere Borverbindungen, wie sie auch in der WO 91/09882 genannt werden, bevorzugt Tetrakis(pentafluorophenyl)borat.

Ionische Verbindungen mit Brönsted-Säuren als Kationen und vorzugsweise ebenfalls nicht koordinierende Gegenionen sind in der WO 93/3067 genannt, bevorzugtes Kation ist das N,N-Dimethylanilinium.

Es hat sich als besonders geeignet erwiesen, wenn das molare Verhältnis von Bor aus der metalloceniumionenbildenden Verbindung zu Übergangsmetall aus dem Metallocenkomplex im Bereich von 0,1 : 1 bis 10 : 1 liegt, insbesondere im Bereich von 1 : 1 bis 5 : 1.

Die metalloceniumbildende Verbindungen B) werden üblicherweise für sich alleine, im Gemisch miteinander oder im Gemisch mit metallorganischen Verbindungen der ersten bis dritten Hauptgruppe des Periodensystems der Elemente, beispielsweise n-Butyllithium, Di-n-Butylmagnesium, Butyloctylmagnesium, Trimethylaluminium, Triethylaluminium, Triisobutylaluminium, Diisobutylaluminiumhydrid verwendet, wobei das Mischungsverhältnis der Komponenten zueinander im allgemeinen nicht kritisch ist.

Vorzugsweise verwendet man Methylaluminoxan oder Tris-(pentafluorphenyl)bor als metalloceniumionenbildende Verbindung B) und insbesondere Methylaluminoxan.

Die erfindungsgemäßen Metallocenkatalysatoren können auch auf einem Trägermaterial eingesetzt werden.

Als Trägermaterialien werden vorzugsweise feinteilige Träger eingesetzt, die bevorzugt einen Teilchendurchmesser im Bereich von 1 bis 300  $\mu\text{m}$  aufweisen, insbesondere von 30 bis 70  $\mu\text{m}$ . Geeignete Trägermaterialien sind beispielsweise Kieselgele, bevorzugt solche der Formel  $\text{SiO}_2 \cdot a \text{ Al}_2\text{O}_3$ , worin a für eine Zahl im Bereich von 0 bis 2 steht, vorzugsweise 0 bis 0,5; dies sind also Alumosilikate oder Siliciumdioxid. Derartige Produkte sind im Handel erhältlich, z. B. Silica Gel 332 der Fa. Grace. Weitere Träger sind u. a. feinteilige Polyolefine, beispielsweise feinteiliges Polypropylen.

Die Herstellung der Propylenpolymerisate kann in den üblichen, für die Polymerisation von Olefinen verwendeten Reaktoren entweder diskontinuierlich oder vorzugsweise kontinuierlich erfolgen. Geeignete Reaktoren sind unter anderem kontinuierlich betriebene Rührkessel, wobei man gegebenenfalls auch eine Reihe von mehreren hintereinandergeschalteten Rührkesseln verwenden kann. Die Polymerisationsreaktionen lassen sich in der Gasphase in Suspension, in flüssigen und in überkritischen Monomeren oder in inerten Lösungsmitteln durchführen.

Die Polymerisationsbedingungen sind an sich unkritisch. Drücke von 100 bis 350 000 kPa, vorzugsweise 100 bis 250 000 und insbesondere 100 bis 100 000 kPa, Temperaturen von 0 bis 400°C, vorzugsweise 20 bis 250°C und insbesondere 50 bis 100°C haben sich als geeignet erwiesen.

Vorzugsweise führt man die Homopolymerisationen des Propylens oder die Copolymerisationen des Propylens mit  $C_2$ - bis  $C_{10}$ -Alk-1-enen in einer gerührten Gasphase, wie beispielsweise dem NOVOLEN®-Propylenpolymerisationsverfahren der BASF durch. Gut geeignete Verfahrensbedingungen hierfür sind Polymerisationsdrücke im Bereich von 1000 bis 4000 kPa und Polymerisationstemperaturen im Bereich von 50 bis 100°C. Es können auch mehrerer Polymerisationsreaktoren, vorzugsweise zwei Reaktoren, in Reihe geschaltet sein.

Das mittlere Molekulargewicht der Polymeren kann mit den in der Polymerisationstechnik üblichen Methoden gesteuert werden, beispielsweise durch Zufuhr von Molekulargewichtsreglern, wie Wasserstoff, welche zu einer Reduzierung des Molekulargewichts des Polymeren führt oder durch Variation der Polymerisationstemperatur, wobei hohe Polymerisationstemperaturen üblicherweise ebenfalls zu reduzierten Molekulargewichten führen.

Die erfindungsgemäßen Homopolymerisate des Propylens oder Copolymerisate des Propylens mit  $C_2$ - bis  $C_{10}$ -Alk-1-enen haben im allgemeinen einen Schmelzflußindex (Melt Flow Rate, MFR) gemessen bei 230°C und 2,16 kg Auflagegewicht nach DIN 53 735 im Bereich von 0,1 bis 10000 g/10 min, vorzugsweise im Bereich von 2 bis 10000 und insbesondere im Bereich von 2 bis 500.

Das mittlere Molekulargewicht  $M_w$  der erfindungsgemäßen Homopolymerisate des Propylens oder Copoly-

merisate des Propylens mit  $C_2$ - bis  $C_{10}$ -Alk-1-enen, gemessen mit der Methode der Gelpermeationschromatographie (GPC) bei  $140^\circ\text{C}$  in 1,2,4-Trichlorbenzol gegen Polypropylenstandard, liegt üblicherweise im Bereich von 4.000 bis 850.000, vorzugsweise im Bereich von 50.000 bis 450.000 und insbesondere im Bereich von 100.000 bis 450.000.

Die Molekulargewichtsverteilung der erfindungsgemäßen Propylenpolymerisate  $M_w/M_n$ , bestimmt wie das mittlere Molekulargewicht  $M_w$  mittels GPC, liegt im allgemeinen im Bereich von 1,2 bis 6,0 vorzugsweise im Bereich von 1,5 bis 3,0.

Sowohl das Molekulargewicht  $M_w$ , die Molekulargewichtsverteilung  $M_w/M_n$ , sowie insbesondere der MFR-Wert können auch mit der Methode des peroxidisch initiierten Abbaus eines Ausgangspolymerisats, vorteilhaft in einem Extruder, eingestellt werden.

Diese Methode ist dem Fachmann bekannt.

Die erfindungsgemäßen Homopolymerisate des Propylens haben im allgemeinen einen Schmelzpunkt, bestimmt mit der Methode der Differential Scanning Calorimetrie (DSC) im Bereich von  $80^\circ\text{C}$  bis  $165^\circ\text{C}$ , vorzugsweise im Bereich von  $135^\circ\text{C}$  bis  $165^\circ\text{C}$  und insbesondere im Bereich von  $140^\circ\text{C}$  bis  $165^\circ\text{C}$ .

Die erfindungsgemäßen Copolymerisate des Propylens mit  $C_2$ - bis  $C_{10}$ -Alk-1-enen haben im allgemeinen einen Schmelzpunkt, bestimmt mit der Methode der Differential Scanning Calorimetrie (DSC) (Aufheizgeschwindigkeit  $20^\circ\text{C}/\text{min}$ ), im Bereich von  $60^\circ\text{C}$  bis  $160^\circ\text{C}$ , vorzugsweise im Bereich von  $80$  bis  $150^\circ\text{C}$  und insbesondere im Bereich von  $100^\circ\text{C}$  bis  $150^\circ\text{C}$ .

Der Pentadengehalt mmmmm der erfindungsgemäßen Homopolymerisate, bestimmt mit der Methode der  $^{13}\text{C}$ -NMR-Spektroskopie, liegt üblicherweise im Bereich von 60% bis 99%, vorzugsweise im Bereich von 80% bis 98%.

Der chemisch gebundene Comonomeranteil der erfindungsgemäßen Copolymerisate des Propylens mit  $C_2$ - bis  $C_{10}$ -Alk-1-enen, gemessen mit der Methode der  $^{13}\text{C}$ -NMR-Spektroskopie, liegt im allgemeinen im Bereich von 0,001 bis 35 mol-%, vorzugsweise im Bereich von 0,01 bis 15 mol-%, bezogen auf das Copolymere.

Im Sinne der Erfindung sehr gut geeignete Propylenhomopolymerisate oder Copolymerisate des Propylens mit  $C_2$ - bis  $C_{10}$ -Alk-1-enen erhält man, wenn man die entsprechenden Monomere in Gegenwart eines erfindungsgemäßen Katalysatorsystems polymerisiert, welches Dimethylsilandiyl-bis-[3,3'-(2-methylbenzindenyl)]-zirkoniumdichlorid als Metallocenkomplex (I) enthält.

Die so erhältlichen Propylen-Homo- oder Copolymerisate haben dann in der Regel die bereits vorher genannten Polymereigenschaften wie MFR,  $M_w$ ,  $M_w/M_n$ , Schmelzpunkt, Pentadengehalt und Comonomergehalt.

Bevorzugte mit dem Dimethylsilandiyl-bis-[3,3'-(2-methylbenzindenyl)]-zirkoniumdichlorid-Katalysator erhältlichen Copolymerisate des Propylens mit  $C_2$ - bis  $C_{10}$ -Alk-1-enen, sind statistische Copolymerisate aus Propylen und Ethylen mit 0,1% bis 10 mol-%, vorzugsweise 0,2 bis 7 mol-%, bezogen auf das Polymer, vom Ethylen abgeleiteten Einheiten, statistische Copolymerisate aus Propylen und 1-Buten mit 0,5 bis 20 mol-%, vorzugsweise 1 bis 15 mol-%, bezogen auf das Polymer, vom 1-Buten abgeleiteten Einheiten, statistische Terpolymerisate aus Propylen, Ethylen und 1-Buten mit 0,1 bis 10 mol-%, vorzugsweise 0,2 bis 7 mol-%, bezogen auf das Terpolymer, vom Ethylen abgeleiteten Einheiten und 0,5 bis 20 mol-%, vorzugsweise 1 bis 15 mol-%, bezogen auf das Terpolymer, vom 1-Buten abgeleiteten Einheiten.

Zur Herstellung der erfindungsgemäßen Folie wird üblicherweise ein erfindungsgemäßes Propylenhomo- oder Copolymerisat oder Mischungen dieser Polymerisate in einem oder mehreren Extrudern aufgeschmolzen und die Schmelze durch eine Breitschlitzdüse extrudiert oder coextrudiert. Danach wird die unter den Schmelzpunkt des Polymers abgekühlte Folie längs und quer zur Extrusionsrichtung biaxial gestreckt, wobei das Streckverhältnis in Längsrichtung in der Regel im Bereich von 1 bis 20, vorzugsweise im Bereich von 3,5 bis 10 liegt und das Produkt aus den Streckverhältnissen in Längs- und Querrichtung im allgemeinen im Bereich von 1 bis 20, vorzugsweise im Bereich von 3,5 bis 10 liegt.

Die Streckung der Folie kann erst in die eine Richtung und anschließend in die andere Richtung erfolgen (Tenter-Prozeß) oder die Streckung in beide Richtungen kann gleichzeitig durchgeführt werden (Folienblasprozeß, "bubble process").

Die Extrusionstemperatur des Polymeren liegt üblicherweise im Bereich von  $180$  bis  $280^\circ\text{C}$ , vorzugsweise im Bereich von  $210$  bis  $260^\circ\text{C}$ . Die geeignete Temperatur der, vor der Streckung, abgekühlten Folie kann vom Fachmann in wenigen Versuchen ermittelt werden. Sie liegt üblicherweise im Bereich von  $1$  bis  $50^\circ\text{C}$ , vorzugsweise im Bereich von  $2$  bis  $25^\circ\text{C}$  und insbesondere im Bereich von  $2$  bis  $10^\circ\text{C}$  unter dem Wert des höchsten Schmelzpunkts, des für die Extrusion eingesetzten Polymeren oder Polymergemisches. Das Verfahren der biaxialen Orientierung an sich ist dem Fachmann bekannt und im übrigen in Handbuch der Kunststoffextrusionstechnik, Band 2, Hrsg. F. Hensen, Carl Hanser Verlag, München, Wien (1986), Kapitel 8, insbesondere 8.3.1, Seite 243 bis 270, ausführlich beschrieben.

Die Dicke der so erhältlichen, erfindungsgemäßen einschichtigen Folien liegt im allgemeinen im Bereich von  $0,1$  bis  $150\text{ }\mu\text{m}$ , vorzugsweise im Bereich von  $0,2$  bis  $100\text{ }\mu\text{m}$  und insbesondere im Bereich von  $0,4$  bis  $70\text{ }\mu\text{m}$ .

Die Dickenverteilung oder "Welligkeit" der Folie quer zur Extrusionsrichtung ist sehr gering; sie liegt im allgemeinen im Bereich von 0,05 bis 5%, vorzugsweise im Bereich von 0,05 bis 1,5%.

Für den Fall von mehrschichtigen Folien ist die Anzahl der Schichten, sowie deren Sequenz im allgemeinen nicht kritisch, jedoch sind zweischichtige oder dreischichtige Folien bevorzugt.

Die erfindungsgemäßen Folien zeichnen sich durch gute optische, thermische und mechanische Eigenschaften aus; sie lassen sich sehr gut verarbeiten und vor allem bei hoher Streckgeschwindigkeit orientieren.

Der Streuwert der erfindungsgemäßen Folien, gemessen nach ASTM D1003 (1990), liegt im allgemeinen im Bereich von 0,05 bis 3,5%, vorzugsweise im Bereich von 0,05 bis 2% und insbesondere im Bereich von 0,1 bis 0,5%.

Der Glanz der erfindungsgemäßen Folien, gemessen nach ASTM D2457 bei 20°, liegt im allgemeinen im Bereich von 50 bis 200 Skt, vorzugsweise im Bereich von 100 bis 200 Skt.

Der E-Modul der erfindungsgemäßen Folien, gemessen nach ASTM D882 liegt im allgemeinen im Bereich von 800 bis 6000 N/mm<sup>2</sup>, vorzugsweise im Bereich von 1000 bis 5000 N/mm<sup>2</sup> und insbesondere im Bereich von 2000 bis 4500 N/mm<sup>2</sup>.

Die Durchlässigkeit der erfindungsgemäßen Folien für Wasserdampf, gemessen nach DIN 53 122, liegt im allgemeinen im Bereich von 0,05 bis 0,5 g/m<sup>2</sup>/d, vorzugsweise im Bereich von 0,1 bis 0,3 g/m<sup>2</sup>/d.

Die erfindungsgemäßen ein- oder mehrschichtigen Folien können noch die üblichen Thermoplast-Additive in den üblichen Mengen enthalten. Als Additive kommen in Frage Antistatika, Gleitmittel, wie Fettsäureamide, beispielsweise Erucasäureamid, Stabilisatoren, Neutralisationsmittel, wie Calciumstearat, Pigmente und außerdem anorganische Füllstoffe wie Talkum, Aluminiumoxid, Aluminiumsulfat, Bariumsulfat, Calciummagnesiumcarbonat, Siliciumdioxid, Titandioxid sowie organische Füllstoffe wie Polyester, Polystyrol, Polyamid und halogenierte organische Polymere.

Die erfindungsgemäßen Folien zeichnen sich unter anderem dadurch aus, daß sie sich aus Propylenpolymerisaten mit einem verhältnismäßig hohen MFR-Wert im Biaxialorientierungs-Verfahren herstellen lassen und daß sie, bei unter anderem guten mechanischen und optischen Eigenschaften (beispielsweise Glanz), sehr dünn und reißfest sind. Ferner weisen die erfindungsgemäßen Folien im allgemeinen eine gute Heißsiegelfähigkeit auf (geringe Heißsiegeltemperatur), welches sie unter anderem für die Verpackungsanwendung prädestiniert. In mehrschichtigen Folien genügt in der Regel, beispielsweise für günstige Heißsiegeleigenschaften, eine dünne Deckschicht aus der erfindungsgemäßen Polypropylenfolie. Ferner sind die erfindungsgemäßen Folien, unter anderem aus Gründen der geringen Dicke des Dielektrikums (Folie), sehr gut als Elektroisierfolie und insbesondere als Kondensatorfolie geeignet.

#### Beispiele

#### Beispiele 1 bis 6

#### Herstellung von erfindungsgemäßen bo-Homopolypropylenfolie

Homopolypropylen, welches mittels NOVOLEN® Gasphasenpolymerisation von Propylen bei einer Temperatur von 60°C und einem Druck von 2400 kPa, ohne Wasserstoffregelung des Molekulargewichts im Beisein eines auf Silicagel fixierten Dimethylsilandiy[bis[3,3'-(2-methyl-benzindenyl)]zirkoniumdichlorid/Methylaluminonoxan-Katalysators hergestellt wurde, hatte einen MFR-Wert von 4,0 g/10 min und einem DSC-Schmelzpunkt von 145°C. Ein Teil wurde mittels Peroxidabbau im Extruder auf einen MFR-Wert von 8 oder 20 g/10 min abgebaut.

Die Polymerisate wurden extrudiert und bei einer Temperatur von 140°C auf einer sogenannten Tenter-Einheit bidirektional gestreckt (bo-Verfahren). Dabei erhielt man die o-PP-Folien, die in Tabelle 1 aufgelistet sind.

Tabelle 1

Eigenschaft	Einheit	Bsp. 1	Bsp. 2	Bsp. 3	Bsp. 4	Bsp. 5	Bsp. 6
MFR	[g/10min]	4	4	8	8	20	20
Foliendicke	$\mu\text{m}$	17	34	12	28	12	35
Streuwert ASTM D1003	%	0,1	0,2	0,1	0,2	0,1	0,2
Glanz, 20° ASTM D2457	Skt	116	141	116	137	112	143
Zugversuch, längs ISO 527							
Dicke	$\mu\text{m}$	20	37	15	32	13	36
Dehnung	%	200	220	210	210	210	210
Kraft	N	38	71	30	58	23	58
Zugversuch, quer ISO 527							
Dicke	$\mu\text{m}$	20	36	14	32	13	37
Dehnung	%	34	38	37	34	28	37
Kraft	N	103	180	76	160	63	170
E-Modul ASTM D882							
Steifigkeit längs	N/mm <sup>2</sup>	1340	1250	1700	1490	1610	1440
quer	N/mm <sup>2</sup>	3360	3070	3110	3420	4090	3220
Permeation Wasserdampf	P	-	0,19	-	-	-	0,21

Beispiele 7 bis 13

## Herstellung von erfindungsgemäßen bo-Propylencopolymerfolien

Mittels NOVOLLEN® Gasphasenpolymerisation wurde Propylen mit verschiedenen Comonomeren (siehe Tabelle 2) bei 60°C und 2400 kPa im Beisein eines auf Silicagel fixierten Dimethylsilandiybis[3,3'-(2-methylbenzindenyl)]zirkoniumdichlorid/Methylaluminioxankatalysators copolymerisiert.

Die Polymerisate wurden dann zu bo-Folien weiterverarbeitet ("bubble process").

An den Folien wurden unter anderem die Größen Kraft, Dehnung und Reißfestigkeit im Reißfestigkeitstest nach ISO 527 bestimmt.

Die Daten sind in Tabelle 2 zusammengestellt.

Tabelle 2

Bsp.	Comonomer	Comonomergehalt mol-%	Schmelzpunkt °C	Strecktemperatur °C	MFI g/10min	Folien-Dicke $\mu\text{m}$		Kraft N		Dehnung %		Reißfestigkeit N/mm <sup>2</sup>	
						längs	quer	längs	quer	längs	quer	längs	quer
7	Ethylen	1,6	137	135	6	14	18	28,3	35,7	131	115	134,8	132,2
8	Ethylen	1,6	137	130	6	22	24	65,7	72,7	75	91	199,1	201,9
9	Ethylen	1,6	137	125	6	26	29	81	72,9	64	48	207,7	167,6
10	1-Buten	1,1	140	135	4	21	24	68,4	76,9	71	83	217,1	213,6
11	1-Buten	1,1	140	130	4	28	35	86,7	84,3	68	48	206,4	160,6
12	1-Buten	1,7	135	135	4	17	18	26,7	36,2	147	138	104,7	134,1
13	1-Buten	1,7	135	130	4	23	27	66,8	70,8	71	73	193,6	174,8

## Patentansprüche

1. Verwendung von Homopolymerisaten des Propylens oder Copolymerisaten des Propylens mit C<sub>2</sub>- bis

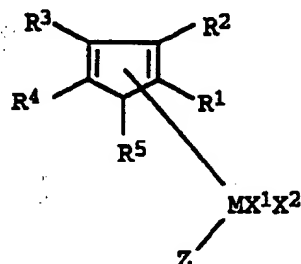
C<sub>10</sub>-Alk-1-enen, die durch die Polymerisation der entsprechenden Monomeren mit Metallocenkatalysatoren erhältlich sind, zur Herstellung einer biaxial orientierten ein- oder mehrschichtigen Polypropylenfolie.

2. Verwendung von Homopolymerisaten des Propylens oder Copolymerisaten des Propylens mit C<sub>2</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alk-1-enen nach Anspruch 1, wobei die Homopolymerisate des Propylens oder die Copolymerisate des Propylens einen Schmelzflußindex im Bereich von 2 bis 10 000 g/10 min haben.

3. Verwendung von Homopolymerisaten des Propylens oder Copolymerisaten des Propylens mit C<sub>2</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alk-1-enen nach den Ansprüchen 1 bis 2, wobei die Homopolymerisate des Propylens oder die Copolymerisate des Propylens einen Schmelzpunkt im Bereich von 80 bis 150°C haben.

4. Verwendung von Homopolymerisaten des Propylens oder Copolymerisaten des Propylens mit C<sub>2</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alk-1-enen nach den Ansprüchen 1 bis 3, wobei man als Metallocenkatalysatoren solche, enthaltend als aktive Bestandteile

A) einen Metallocenkomplex oder mehrere Metallocenkomplexe der allgemeinen Formel (I)



(I)

in der die Substituenten und Indizes folgende Bedeutung haben:

M Titan, Zirkonium, Hafnium, Vanadium, Niob oder Tantal,

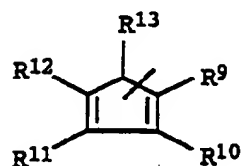
X¹, X² Fluor, Chlor, Brom, Iod, Wasserstoff, C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkyl, C<sub>6</sub>- bis C<sub>15</sub>-Aryl, —OR<sup>6</sup> oder —NR<sup>6</sup>R<sup>7</sup>

wobei R<sup>6</sup>, R<sup>7</sup> C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkyl, C<sub>6</sub>- bis C<sub>15</sub>-Aryl, Alkylaryl, Arylalkyl, Fluoralkyl oder Fluoraryl mit jeweils 1 bis 10 C-Atomen im Alkylrest und 6 bis 20 C-Atomen im Arylrest bedeutet,

R¹ bis R⁵ Wasserstoff, C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkyl, 5- bis 7-gliedriges Cycloalkyl, das seinerseits ein C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkyl als Substituent tragen kann, C<sub>6</sub>- bis C<sub>10</sub>-Aryl oder Arylalkyl, wobei gegebenenfalls auch zwei benachbarte Reste gemeinsam für 4 bis 15 C-Atome aufweisende cyclische Gruppen stehen können, oder Si(R<sup>6</sup>)<sub>3</sub> mit

R<sup>6</sup> C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkyl, C<sub>6</sub>- bis C<sub>15</sub>-Aryl oder C<sub>3</sub>- bis C<sub>10</sub>-Cycloalkyl,

Z für X oder



steht,

wobei die Reste

R⁹ bis R¹³ Wasserstoff, C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkyl, 5- bis 7-gliedriges Cycloalkyl, das seinerseits ein C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkyl als Substituent tragen kann, C<sub>6</sub>- bis C<sub>15</sub>-Aryl oder Arylalkyl bedeuten und wobei gegebenenfalls auch zwei benachbarte Reste gemeinsam für 4 bis 15 C-Atome aufweisende cyclische Gruppen stehen können, oder Si(R<sup>14</sup>)<sub>3</sub> mit

R<sup>14</sup> C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkyl, C<sub>6</sub>- bis C<sub>15</sub>-Aryl oder C<sub>3</sub>- bis C<sub>10</sub>-Cycloalkyl,

oder wobei die Reste

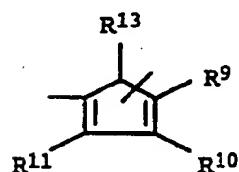
R<sup>4</sup> und Z gemeinsam eine Gruppierung —[Y(R<sup>15</sup>)(R<sup>16</sup>)]<sub>n</sub>—E— bilden, in der

Y gleich oder verschieden sein kann und für Silicium, Germanium, Zinn oder Kohlenstoff steht,

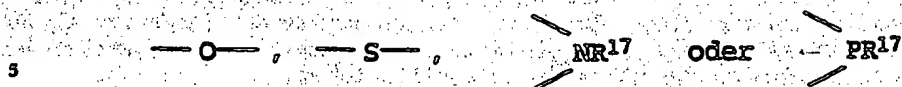
R<sup>15</sup>, R<sup>16</sup> für Wasserstoff, C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkyl, C<sub>3</sub>- bis C<sub>10</sub>-Cycloalkyl oder C<sub>6</sub>- bis C<sub>15</sub>-Aryl

n für die Zahlen 1, 2, 3 oder 4

E für



oder A steht, wobei A



bedeutet,  
mit  $\text{R}^{17}$   $\text{C}_1$ - bis  $\text{C}_{10}$ -Alkyl,  $\text{C}_6$ - bis  $\text{C}_{15}$ -Aryl,  $\text{C}_3$ - bis  $\text{C}_{10}$ -Cycloalkyl, Alkylaryl oder  $\text{Si}(\text{R}^{18})_3$ ,  
mit  $\text{R}^{18}$   $\text{C}_1$ - bis  $\text{C}_{10}$ -Alkyl,  $\text{C}_6$ - bis  $\text{C}_{15}$ -Aryl,  $\text{C}_3$ - bis  $\text{C}_{10}$ -Cycloalkyl oder Alkylaryl  
und

B) eine metalloceniumionenbildende Verbindung verwendet.

5. Verwendung von Homopolymerisaten des Propylens oder Copolymerisaten des Propylens mit  $\text{C}_2$ - bis  $\text{C}_{10}$ -Alk-1-enen nach Anspruch 4, wobei der Metallocenkomplex (II) Dimethylsilandrylbis-{3,3'-(2-methylbenzindenyl)}zirkoniumdichlorid ist.